

(19) RÉPUBLIQUE FRANÇAISE  
INSTITUT NATIONAL  
DE LA PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE  
PARIS

(11) N° de publication :  
(à n'utiliser que pour les  
commandes de reproduction)

2 831 994

(21) N° d'enregistrement national : 01 14322

(51) Int Cl<sup>7</sup> : H 01 M 8/04, G 05 D 7/00

(12)

DEMANDE DE BREVET D'INVENTION

A1

(22) Date de dépôt : 06.11.01.

(30) Priorité :

(43) Date de mise à la disposition du public de la demande : 09.05.03 Bulletin 03/19.

(56) Liste des documents cités dans le rapport de recherche préliminaire : Se reporter à la fin du présent fascicule

(60) Références à d'autres documents nationaux apparentés :

(71) Demandeur(s) : L'AIR LIQUIDE SOCIETE ANONYME  
POUR L'ÉTUDE ET L'EXPLOITATION DES PROCÉ-  
DES GEORGES CLAUDE — FR.

(72) Inventeur(s) : CHARLAT PIERRE.

(73) Titulaire(s) :

(74) Mandataire(s) :

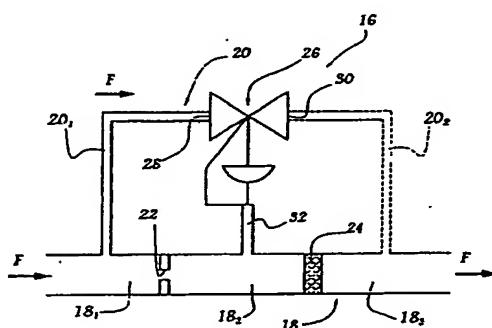
(54) CONTROLE DU TAUX D'HYDROGENE A L'ANODE D'UNE PILE A COMBUSTIBLE.

(57) Selon ce procédé :  
- on fait s'écouler le mélange gazeux évacué du bloc pile, comprenant de l'hydrogène ainsi que des gaz parasites, en particulier de l'azote, dans une ligne principale (18) et une ligne de dérivation (20) mises en communication avec le circuit de purge.

- on réalise, dans la ligne principale, des premiers (22) et seconds (24) moyens de création de pertes de charge, tels que les pressions d'équilibre, dans la zone médiane (18<sub>2</sub>), sont différentes pour l'hydrogène et les gaz parasites;

- on détermine la pression d'un mélange gazeux de référence dans la zone médiane (18<sub>2</sub>); et

- on régule l'écoulement d'un mélange gazeux instantané, dans la ligne de dérivation, en fonction des valeurs relatives de la pression de ce mélange instantané et de la pression du mélange de référence, dans la zone médiane.



FR 2 831 994 - A1



La présente invention concerne un procédé et un dispositif de contrôle de la teneur en hydrogène à la sortie d'un ensemble de production d'énergie à base de pile à combustible, ainsi qu'un ensemble de production d'énergie pourvu d'un tel dispositif.

De façon classique, un tel ensemble de production d'énergie comprend un bloc pile à combustible, qui comporte un compartiment anodique, où se produit l'oxydation de l'hydrogène, ainsi qu'un compartiment cathodique, dans lequel l'oxygène de l'air est réduit, avec production d'eau.

Une membrane de type échangeuse d'ions sépare physiquement les compartiments anodique et cathodique, alors que ces derniers se trouvent reliés par un circuit électrique extérieur.

Le compartiment cathodique est pourvu d'une conduite d'arrivée d'air, ainsi que d'une conduite d'évacuation de cet air appauvri en oxygène, mélangé à de l'eau.

De façon analogue, le compartiment anodique est mis en communication avec une conduite d'arrivée d'hydrogène, ainsi qu'une ligne de sortie de l'hydrogène consommé. Ce dernier est mélangé avec une fraction d'eau, qui a été produite au niveau de la cathode et a traversé la membrane de séparation précitée.

Il est connu de recycler, vers l'amont du bloc pile, une fraction de l'hydrogène véhiculé par la ligne de sortie, alors que l'autre fraction de cet hydrogène est évacuée par une purge.

Par ailleurs, des gaz parasites, autres que l'hydrogène, ont tendance à s'accumuler dans le compartiment anodique. Il s'agit en particulier de l'azote, initialement présent dans le compartiment cathodique, qui traverse la membrane de séparation.

Or, le fonctionnement correct du bloc pile implique une pression partielle d'hydrogène suffisamment élevée dans le compartiment anodique. Le débit de la purge doit donc être suffisamment important, pour pouvoir éliminer de 5 l'hydrogène mélangé à ces gaz parasites, qui sera remplacé par de l'hydrogène pur, admis en amont de la pile. En revanche, une telle purge provoque une perte de combustible.

On conçoit donc aisément qu'il existe un compromis 10 optimal entre, d'une part, la baisse de performances due à la purge de l'hydrogène et, d'autre part, la baisse de performances due à la présence de gaz parasites dans l'hydrogène. Ce compromis correspond à une concentration optimale en hydrogène, à la sortie du compartiment 15 anodique.

Ceci étant posé, l'invention se propose de mettre en œuvre un procédé permettant de contrôler de façon simple et fiable la teneur instantanée en hydrogène, à la sortie du bloc pile, de sorte qu'elle soit en permanence aussi proche 20 que possible de la teneur optimale évoquée ci-dessus.

A cet effet, elle a pour objet un procédé de contrôle de la teneur en hydrogène d'un mélange gazeux, circulant à la sortie d'une anode d'un bloc pile à combustible, ce mélange gazeux comprenant de l'hydrogène ainsi que des gaz 25 parasites, en particulier de l'azote, procédé dans lequel on évacue, par un circuit de purge, une fraction de ce mélange gazeux de sortie, caractérisé en ce que :

- on fait s'écouler ledit mélange gazeux dans une ligne principale, ainsi qu'une ligne de dérivation, 30 disposées en parallèle et mises en communication avec ledit circuit de purge ;

- on réalise, dans la ligne principale, des premiers et seconds moyens de création de pertes de charge, tels que les pressions d'équilibre, dans une zone médiane

de la ligne principale, située entre ces premiers et seconds moyens de création de pertes de charge, sont différentes pour l'hydrogène et pour les gaz parasites ;

5 - on détermine la pression d'un mélange gazeux de référence, possédant une teneur donnée en hydrogène, dans la zone médiane de la ligne principale ; et

10 - on régule l'écoulement d'un mélange gazeux instantané, dans la ligne de dérivation, en fonction des valeurs relatives, d'une part, de la pression de ce mélange instantané et, d'autre part, de la pression du mélange de référence, dans ladite zone médiane.

Selon d'autres caractéristiques de l'invention :

15 - on maintient sensiblement constante la différence entre la pression amont et la pression aval, régnant respectivement en amont et en aval de cette ligne principale et de cette ligne de dérivation ;

20 - les premiers et seconds moyens de création de pertes de charge sont tels que la pression d'équilibre de l'hydrogène est supérieure à la pression d'équilibre des gaz parasites, dans la zone médiane ;

25 - on autorise l'écoulement du mélange gazeux instantané dans la dérivation, uniquement lorsque la pression de ce mélange gazeux instantané est inférieure à la pression du mélange gazeux de référence, dans la zone médiane ;

- on munit la ligne de dérivation d'un organe de régulation de la pression amont ;

30 - on affecte audit organe de régulation de la pression amont, une pression de référence représentative de la pression du mélange gazeux dans la zone médiane ;

- les premiers et seconds moyens de création de pertes de charge sont tels que la pression d'équilibre des gaz parasites est supérieure à la pression d'équilibre de l'hydrogène, dans la zone médiane ;

- on autorise l'écoulement du mélange gazeux instantané dans la dérivation, uniquement lorsque la pression de ce mélange gazeux instantané est supérieure à la pression du mélange gazeux de référence, dans la zone 5 médiane ;

- on munit la ligne de dérivation d'un organe de régulation de la pression aval ;

- on affecte audit organe de régulation de la pression aval, une pression de référence représentative de 10 la pression du mélange gazeux, dans la zone médiane ;

- les premiers moyens de création de perte de charge sont aptes à créer une perte de charge singulière ou laminaire, alors que les seconds moyens de création de perte de charge sont aptes à créer une perte de charge 15 laminaire ou singulière ;

- les moyens aptes à créer une perte de charge singulière comprennent un trou calibré ;

- les moyens aptes à créer une perte de charge laminaire comprennent un organe poreux ;

20 - on chauffe la ligne principale, au moins au voisinage des premiers et seconds moyens de création de pertes de charge.

L'invention a également pour objet un dispositif de contrôle de la teneur en hydrogène d'un mélange gazeux, 25 pour la mise en œuvre du procédé, tel que défini ci-dessus, ce mélange gazeux circulant à la sortie d'une anode d'un bloc pile à combustible et comprenant de l'hydrogène ainsi que des gaz parasites, en particulier de l'azote, ce dispositif pouvant être mis en communication avec un 30 circuit de purge, prévu en aval du bloc pile, caractérisé en ce que ce dispositif comprend :

- une ligne principale, ainsi qu'une ligne de dérivation, placées en parallèle ;

- des premiers et seconds moyens de création de pertes de charge, prévus dans la ligne principale, qui sont tels que les pressions d'équilibre, dans une zone médiane de la ligne principale, située entre ces premiers et seconds moyens de création de pertes de charge, sont différentes pour l'hydrogène et pour les gaz parasites ;

- un organe de régulation de la pression, disposé sur la ligne de dérivation ; et

- des moyens permettant de mettre cet organe de régulation à une pression de référence, représentative de la pression du mélange gazeux dans la zone médiane de la ligne principale.

Selon d'autres caractéristiques de l'invention :

- le dispositif comprend en outre des moyens de contrôle de la pression, aptes à maintenir sensiblement constante la différence entre la pression amont et la pression aval, régnant respectivement en amont et en aval de la ligne principale et de la ligne de dérivation ;

- les premiers et seconds moyens de création de pertes de charge sont tels que la pression d'équilibre de l'hydrogène est supérieure à la pression d'équilibre des gaz parasites, dans la zone médiane ;

- l'organe de régulation de pression est un organe de régulation de la pression amont ;

- les premiers et seconds moyens de création de pertes de charge sont tels que la pression d'équilibre des gaz parasites est supérieure à la pression d'équilibre de l'hydrogène, dans la zone médiane ;

- l'organe de régulation de la pression est un organe de régulation de la pression aval ;

- les moyens de mise à une pression de référence comprennent une ligne, mettant en communication cet organe avec la zone médiane ;

- les premiers moyens de création de perte de charge sont aptes à créer une perte de charge singulière ou laminaire, alors que les seconds moyens de création de perte de charge sont aptes à créer une perte de charge laminaire ou singulière ;

5 - les moyens aptes à créer une perte de charge singulière comprennent un trou calibré ;

- les moyens aptes à créer une perte de charge laminaire comprennent un organe poreux ;

10 - le dispositif comprend en outre des moyens de chauffage de la ligne principale, prévus au moins au voisinage des premiers et seconds moyens de création de perte de charge.

L'invention a enfin pour objet un ensemble de production d'énergie à base de pile à combustible, 15 comprenant un bloc pile à combustible qui comporte un compartiment cathodique et un compartiment anodique, au moins un circuit d'alimentation en hydrogène, au moins un circuit de sortie et au moins un circuit de purge, 20 permettant d'évacuer un mélange d'hydrogène et de gaz parasites, cet ensemble étant caractérisé en ce que le ou chaque circuit de purge est mis en communication avec un dispositif de contrôle, tel que défini ci-dessus.

L'invention sera mieux comprise à la lecture de la 25 description qui va suivre, donnée uniquement à titre d'exemples non limitatifs et faite en se référant aux dessins annexés, sur lesquels :

- La figure 1 est une vue schématique, 30 illustrant un ensemble de production d'énergie à base de pile à combustible, équipé d'un dispositif de contrôle de la teneur en hydrogène conforme à l'invention ;

- Les figures 2 et 3 sont des vues schématiques, 35 illustrant une première variante de réalisation de ce

dispositif de contrôle, dans deux configurations différentes ; et

- Les figures 4 et 5 sont des vues schématiques, analogues aux figures 2 et 3, illustrant une seconde 5 variante de réalisation de ce dispositif de contrôle, dans deux configurations différentes.

L'ensemble de production d'énergie, représenté schématiquement sur la figure 1, comprend un bloc pile à combustible, qui comporte une anode 2, ainsi qu'une cathode 10 non représentée. Le compartiment anodique 2 reçoit, à une entrée 4, un circuit 6 d'alimentation en hydrogène et, à sa sortie 8, un circuit de sortie 10.

Ce circuit de sortie 10 véhicule l'hydrogène consommé dans le bloc pile, qui est mélangé à une fraction d'eau, 15 qui a été produite dans la cathode et a traversé la membrane échangeuse d'ions, non représentée, permettant la séparation de l'anode et de la cathode. De l'azote, ayant diffusé à travers cette membrane, est également mélangé à l'hydrogène, ainsi que d'éventuelles autres impuretés, 20 initialement présentes dans cet hydrogène.

Le bloc pile à combustible est en outre équipé de deux circuits supplémentaires, non représentés, permettant respectivement l'alimentation en air de la cathode, ainsi que l'évacuation, hors de cette cathode, d'un mélange d'air 25 appauvri et d'eau.

Le circuit de sortie 10 se divise en un circuit 12, permettant de recycler une fraction de l'hydrogène en direction de l'entrée 4, ainsi qu'un circuit de purge 14, permettant d'évacuer l'autre fraction d'hydrogène. Ce 30 circuit 14 débouche dans un dispositif 16, permettant de contrôler la teneur en hydrogène du mélange d'hydrogène et de gaz parasites qui y circule.

Comme le montrent les figures 2 à 4, ce dispositif de contrôle 16 comprend une ligne principale 18, ainsi qu'une

ligne de dérivation 20, qui sont toutes deux mises en communication avec le circuit de purge 14.

La ligne principale 18 est munie d'un trou calibré amont 22, en faisant référence à l'écoulement de gaz 5 (flèches F), réalisé de façon connue sur les parois de cette ligne 18. Ce trou calibré qui, dans sa représentation idéale, possède une longueur nulle et une section transversale de passage donnée, induit une perte de charge singulière dans le mélange gazeux s'écoulant le long de la 10 ligne principale 18.

Puis, un organe poreux 24 est disposé en aval de la ligne principale 18. Cet organe est apte à créer une perte de charge laminaire dans l'écoulement de fluide, circulant dans la ligne précitée 18. A titre de variante, un tel 15 organe 24 peut être remplacé par plusieurs tubes disposés en parallèle, dont la longueur est nettement supérieure à la largeur, avec un nombre de Reynolds inférieur à environ 2000.

La présence du trou calibré 22 et de l'organe poreux 20 24 partage la ligne principale 18 en trois zones, respectivement amont 18<sub>1</sub>, médiane 18<sub>2</sub> et aval 18<sub>3</sub>.

La dérivation 20 est équipée d'un déverseur 26, formant un organe de régulation de la pression amont, qui divise ainsi cette dérivation en une partie amont 20<sub>1</sub> et une 25 partie aval 20<sub>2</sub>.

Ce déverseur 26, représenté de façon schématique, comprend de manière classique une entrée 28 et une sortie 30, toutes deux mises en communication avec la dérivation 20. Par ailleurs, de manière connue, l'écoulement de gaz 30 dans ce déverseur est autorisé, ou empêché, par exemple par l'intermédiaire d'un organe mobile non représenté, qui est repoussé dans sa position de fermeture par des moyens de rappel, notamment élastiques.

Une ligne radiale 32, qui débouche dans le déverseur 26, permet de mettre ce dernier à une pression de référence, de manière connue.

Dans ces conditions, lorsque la pression régnant dans 5 la partie amont 20<sub>1</sub> de la dérivation est supérieure à la somme de cette pression de référence et d'une pression de réglage, correspondant à la tension des moyens de rappel, le déverseur s'ouvre et met en communication les parties amont 20<sub>1</sub> et 20<sub>2</sub>. En revanche, lorsque cette pression amont 10 est inférieure à la somme précitée, ce déverseur se ferme.

Or, la ligne radiale 32 débouche également dans la partie médiane 18<sub>2</sub> de la ligne principale 18. De la sorte, comme cela sera expliqué dans ce qui suit, l'état d'ouverture ou de fermeture du déverseur 26 dépend, entre 15 autres, de la pression régnant dans cette partie médiane 18<sub>2</sub>.

L'utilisation du dispositif de contrôle 16 va maintenant être explicitée en référence aux figures 2 à 4.

Tout d'abord, de façon avantageuse mais non 20 obligatoire, on maintient constante la différence de pressions entre l'amont et l'aval du dispositif 16. Ceci peut être permis en faisant appel à un régulateur de pression, de type connu, par exemple placé en amont du bloc pile. Cette mesure garantit un contrôle plus précis de la 25 teneur en hydrogène.

Dans ces conditions, la différence entre, d'une part, la pression P<sub>AM</sub> régnant dans les zones amont 18<sub>1</sub> et 20<sub>1</sub> et, d'autre part, la pression P<sub>AV</sub> régnant dans les zones aval 18<sub>3</sub> et 20<sub>2</sub>, est maintenue constante. Chacune de ces 30 pressions, respectivement amont et aval, peut par exemple être constante.

Puis, il s'agit d'étalonner le déverseur 26, en particulier en ce qui concerne la tension de ses moyens de rappel.

A cet effet, on fait circuler dans la ligne principale 18 un mélange gazeux de référence, dont la concentration en hydrogène, et donc en gaz parasites, correspond à l'optimum évoqué ci-dessus. On rappellera que cette concentration 5 optimale représente le meilleur compromis entre, d'une part, la baisse de performances de la pile due à la perte de combustible et, d'autre part, la baisse de performances due à la présence des gaz parasites dans l'hydrogène.

A la suite de son passage au travers du trou calibré 10 22, ce mélange de référence possède une certaine pression dans la zone médiane 18<sub>2</sub>, que l'on notera  $P_2(\text{opt})$ . Dans ces conditions, le déverseur 26 s'ouvre lorsque la pression amont  $P_{AM}$ , régnant dans les zones 18<sub>1</sub> et 20<sub>1</sub>, est supérieure 15 à la somme de la pression de référence, en l'occurrence  $P_2(\text{opt})$ , et de la pression de réglage du déverseur, que l'on notera  $P(\text{reg})$ . Cette dernière est impartie par la tension des moyens de rappel du déverseur 26.

Il s'agit alors de régler la tension de ces moyens de rappel, de sorte que  $P(\text{reg})$  équilibre tout juste la 20 différence de pressions entre  $P_{AM}$  et la pression de référence du déverseur, à savoir  $P_2(\text{opt})$ .

On a donc :  $P(\text{reg}) = P_{AM} - P_2(\text{opt})$ .

La phase d'étalonnage du déverseur 26 est alors terminée. Puis, lors d'un fonctionnement normal de la pile 25 à combustible, le mélange gazeux évacué de l'anode 2, par le circuit 8 et la purge 14, possède une certaine teneur en hydrogène, appelée encore teneur instantanée, qui peut être inférieure ou supérieure à la teneur optimale.

Or, la perte de charge singulière provoquée par le 30 trou calibré 22 dépend principalement de la masse volumique des gaz. Par ailleurs, la perte de charge laminaire provoquée par l'organe poreux 24 dépend principalement de leur viscosité. Ainsi, le rapport entre ces deux pertes de

charge dépend principalement du rapport entre la masse volumique et le carré de la viscosité.

De la sorte, si le mélange gazeux possède une teneur instantanée en hydrogène supérieure à la teneur idéale, 5 alors sa pression instantanée dans la partie médiane 18<sub>2</sub>, que l'on notera  $P_2(\text{inst})$ , sera supérieure à  $P_2(\text{opt})$ .

En effet, le rapport précité, entre la masse volumique et le carré de la viscosité, est environ trois fois et demie plus faible pour l'hydrogène que pour l'azote. La 10 perte de charge subie par le fluide au travers du trou calibré 22 est donc d'autant plus faible, qu'il est riche en hydrogène.

La différence entre cette pression amont et la pression instantanée de référence du déverseur, à savoir 15  $P_2(\text{inst})$ , devient donc inférieure à cette pression de réglage, soit :

$$P_{AM} - P_2(\text{inst}) < P(\text{reg})$$

Par conséquent, le déverseur 26 se ferme, à savoir 20 qu'il n'autorise pas l'écoulement du mélange gazeux en direction de la partie aval 20<sub>2</sub> de la dérivation. Cette configuration, illustrée à la figure 3 où la ligne 20<sub>2</sub> est représentée en traits pointillés, implique une réduction du débit de purge.

Dans ces conditions, le débit de gaz recyclé en amont 25 de l'anode, par la conduite 12, est accru de façon correspondante, ce qui contribue à augmenter la concentration des gaz parasites. Ce phénomène se poursuit, jusqu'à ce que la teneur en hydrogène du mélange gazeux devienne inférieure à la teneur optimale, évoquée ci-dessus.

La pression instantanée  $P_2(\text{inst})$  du mélange gazeux, dans la zone médiane 18<sub>2</sub>, devient alors inférieure à la pression optimale  $P_2(\text{opt})$ .

En effet, le mélange instantané est désormais plus riche que le mélange de référence en gaz parasites, notamment en azote, pour lesquels le rapport précité entre la masse volumique et le carré de la viscosité est plus élevé que pour l'hydrogène. La perte de charge subie par ce mélange instantané, au travers du trou 22, est donc plus élevée que celle du mélange de référence.

Dans ces conditions, la différence entre la pression amont  $P_{AM}$  et la pression de référence du déverseur, à savoir 10  $P_2(\text{inst})$ , devient supérieure à la pression de réglage de ce déverseur, soit :

$$P_{AM} - P_2(\text{inst}) > P(\text{reg}).$$

Ceci provoque alors l'ouverture du déverseur, et autorise un écoulement du mélange gazeux en direction de la 15 partie aval 20<sub>2</sub> de la dérivation, comme cela est illustré à la figure 4, où la ligne 20<sub>2</sub> est représentée en traits pleins.

Une telle configuration induit une augmentation du débit de purge, une diminution correspondante du débit de 20 gaz recyclé en amont de l'anode, et donc une augmentation de la teneur en hydrogène. En d'autres termes, les gaz parasites sont éliminés dans une mesure plus importante, qu'ils ne sont produits dans le bloc pile.

On conçoit donc que, grâce au dispositif de contrôle 25 des figures 2 à 4, la pression  $P_2(\text{inst})$  du mélange gazeux est en permanence régulée, de façon à rester voisine de la pression optimale  $P_2(\text{opt})$ . Ceci contribue ainsi à réguler la teneur en hydrogène de ce mélange gazeux, qui est maintenue à une valeur proche de la valeur optimale.

30 Les figures 4 à 5 représentent un dispositif de contrôle 116, conforme à une variante de réalisation de l'invention.

Ce dispositif 116 comprend, de façon analogue à celui 16, une ligne principale 118, ainsi qu'une ligne de dérivation 120.

La ligne principale 118 est munie d'un organe poreux 5 124 amont, en faisant référence à l'écoulement de gaz (flèches F'), puis d'un trou calibré aval 122. Cet organe poreux 124 et ce trou calibré 122 sont analogues, dans leur structure, à ceux 24 et 22 des figures 2 à 4, mais sont disposés de façon inversée, par rapport au sens 10 d'écoulement du gaz.

Cet organe poreux 124 et ce trou calibré 122 partagent la ligne principale 118 en trois zones, respectivement amont 118<sub>1</sub>, médiane 118<sub>2</sub> et aval 118<sub>3</sub>.

La dérivation 120 est équipée d'un détendeur 126, 15 formant un organe de régulation de la pression aval, qui divise ainsi cette dérivation en une partie amont 120<sub>1</sub> et une partie aval 120<sub>2</sub>.

Ce détendeur 126, représenté de façon schématique, comprend de façon classique une entrée 128 et une sortie 20 130, toutes deux mises en communication avec la dérivation 120. L'écoulement de gaz dans ce détendeur est autorisé, ou empêché, par exemple par l'intermédiaire d'un clapet non représenté, qui est repoussé dans sa position de fermeture par des moyens de rappel, notamment élastiques.

25 Une ligne radiale 132, qui débouche dans le détendeur 126, permet de mettre ce dernier à une pression de référence, de manière connue. Dans ces conditions, lorsque la pression P'Av régnant dans la partie aval 120<sub>2</sub> de la dérivation est inférieure à la somme de cette pression de référence et d'une pression de réglage, correspondant à la tension des moyens de rappel, le détendeur s'ouvre et met en communication les parties amont 120<sub>1</sub> et aval 120<sub>2</sub>. En revanche, lorsque cette pression aval est supérieure à la somme précitée, ce détendeur se ferme.

Or, la ligne radiale 132 débouche également dans la partie médiane 118<sub>2</sub> de la ligne principale 118. De la sorte, comme cela sera expliqué dans ce qui suit, l'état d'ouverture ou de fermeture du détendeur 126 dépend, entre autres, de la pression régnant dans cette partie médiane.

5 L'utilisation du dispositif de contrôle 116 va maintenant être explicité en référence aux figures 5 à 7.

On maintient tout d'abord constante la différence entre les pressions amont  $P'_{AV}$  et aval  $P'_{AV}$ , comme pour le 10 dispositif 16.

Il s'agit ensuite d'étalonner le détendeur 126, en particulier en ce qui concerne la tension de ses moyens de rappel.

15 A cet effet, on fait tout d'abord circuler, dans la ligne principale 118, un mélange gazeux de référence, qui est analogue à celui employé pour l'étalonnage du déverseur 26, décrit ci-dessus.

20 A la suite de son passage au travers de l'organe poreux 124, ce mélange de référence possède une certaine pression dans la zone médiane 118<sub>2</sub>, que l'on notera  $P'_{2(opt)}$ . Dans ces conditions, le détendeur 126 s'ouvre lorsque la pression aval  $P'_{AV}$ , régnant dans les zones 118<sub>3</sub> et 120<sub>2</sub>, est inférieure à la somme de la pression de référence, en l'occurrence  $P'_{2(opt)}$ , et de la pression de 25 réglage du détendeur, que l'on notera  $P'(reg)$ . Cette dernière est impartie par la tension des moyens de rappel du détendeur 26.

30 Il s'agit alors de régler la tension de ces moyens de rappel, de sorte que  $P'(reg)$  équilibre tout juste la différence entre  $P'_{AV}$  et la pression de référence du déverseur, à savoir  $P'_{2(opt)}$ .

On a donc :  $P'(reg) = P'_{AV} - P'_{2(opt)}$ .

La phase d'étalonnage du détendeur est alors terminée. Puis, lors d'un fonctionnement normal de la pile à

combustible, le mélange gazeux évacué de l'anode 2 possède une teneur instantanée en hydrogène, qui peut être inférieure ou supérieure à la teneur optimale.

Or, comme cela a été évoqué précédemment, la perte de charge provoquée par l'organe poreux 124 dépend principalement de la viscosité, alors que la perte de charge provoquée par le trou 122 dépend principalement de la masse volumique des gaz. Ainsi, le rapport entre ces deux pertes de charge dépend principalement du rapport entre le carré de la viscosité et la masse volumique.

De la sorte, si le mélange gazeux possède une teneur instantanée en hydrogène supérieure à la teneur idéale, alors sa pression instantanée dans la partie médiane 118<sub>2</sub>, que l'on notera  $P'_{2(inst)}$ , est inférieure à  $P'_{2(opt)}$ .

En effet, le rapport précité entre le carré de la viscosité et la masse volumique est environ trois fois et demie plus faible pour l'azote que pour l'hydrogène. La perte de charge subie par le fluide au travers de l'organe poreux 124 est donc d'autant plus importante que ce mélange est riche en hydrogène.

La différence entre la pression aval et la pression instantanée de référence du détendeur, à savoir  $P'_{2(inst)}$ , devient donc supérieure à la pression de réglage, soit :

$$P'_{av} - P'_{2(inst)} > P'_{(reg)}.$$

Par conséquent, le détendeur 126 se ferme, à savoir qu'il empêche l'écoulement du mélange gazeux en direction de la partie aval 120<sub>2</sub> de la dérivation. Cette configuration, illustrée à la figure 5 où la ligne 120<sub>2</sub> est représentée en traits pointillés, implique une réduction du débit de purge.

Comme expliqué ci-dessus, cette réduction de la purge contribue à augmenter la concentration des gaz parasites, jusqu'à ce que la teneur en hydrogène du mélange gazeux

devienne inférieure à la teneur optimale, évoquée ci-dessus.

La pression instantanée  $P'_2(\text{inst})$  du mélange gazeux dans la zone médiane 118<sub>2</sub>, devient alors supérieure à la 5 pression optimale  $P'_2(\text{opt})$ , puisque la perte de charge subie par ce mélange instantané au travers de l'organe poreux 124 est désormais plus faible que celle du mélange de référence. En effet, ce mélange instantané est plus riche que le mélange de référence en gaz parasites, notamment en 10 azote, pour lesquels le rapport entre le carré de la viscosité et la masse volumique est plus faible que pour l'hydrogène.

Dans ces conditions, la différence entre la pression aval  $P'_{\text{Av}}$  et la pression de référence du détendeur, à savoir 15  $P'_2(\text{inst})$ , devient inférieure ~~à la~~ la pression de réglage de ce détendeur, soit :

$$P'_{\text{Av}} - P'_2(\text{inst}) < P'(\text{reg}).$$

Ceci provoque alors l'ouverture du détendeur, et autorise l'écoulement du mélange gazeux en direction de la 20 partie aval 120<sub>2</sub>, comme cela est illustré à la figure 6, où la ligne 120<sub>2</sub> est représentée en traits pleins.

Une telle configuration induit alors une augmentation du débit de purge, une diminution correspondante du débit de gaz recyclé en amont de l'anode, et donc une 25 augmentation de la teneur en hydrogène à la sortie du bloc pile.

De manière analogue à ce qui a été décrit en référence aux figures 2 et 3, le dispositif de contrôle 116 des figures 4 et 5 permet de réguler en permanence la pression 30 instantanée du mélange gazeux, de sorte que cette dernière reste voisine de la pression optimale  $P'_2(\text{opt})$ . Ceci contribue ainsi à réguler la teneur en hydrogène de ce mélange gazeux, qui est maintenue à une valeur proche de la valeur optimale.

L'invention n'est pas limitée aux exemples décrits et représentés.

Ainsi, il est avantageux de disposer, au voisinage de la ligne principale 18 ou 118, des moyens de chauffage, 5 tels qu'une résistance. Ceci permet d'éviter d'éventuels dysfonctionnements qui seraient dûs à la présence d'eau liquide provenant de la condensation.

L'invention permet de réaliser les objectifs précédemment mentionnés.

10 En effet, elle permet de réguler de façon fiable la teneur en hydrogène du mélange gazeux évacué de la pile à combustible. Par ailleurs, le dispositif de contrôle conforme à l'invention est d'un encombrement réduit, ainsi que d'une structure simple. Enfin, ce dispositif ne 15 nécessite que peu d'interventions de la part de l'opérateur, hormis le réglage des moyens de rappel de l'organe de régulation.

REVENDICATIONS

1. Procédé de contrôle de la teneur en hydrogène d'un mélange gazeux, circulant à la sortie d'une anode (2) d'un bloc pile à combustible, ce mélange gazeux comprenant de l'hydrogène ainsi que des gaz parasites, en particulier de l'azote, procédé dans lequel on évacue, par un circuit de purge (14), une fraction de ce mélange gazeux de sortie, caractérisé en ce que :
  - 10 - on fait s'écouler ledit mélange gazeux dans une ligne principale (18 ; 118), ainsi qu'une ligne de dérivation (20 ; 120), disposées en parallèle et mises en communication avec ledit circuit de purge ;
  - 15 - on réalise, dans la ligne principale, des premiers (22 ; 124) et seconds (24 ; 122) moyens de création de pertes de charge, tels que les pressions d'équilibre, dans une zone médiane (18<sub>2</sub> ; 118<sub>2</sub>) de la ligne principale, située entre ces premiers et seconds moyens de création de pertes de charge, sont différentes pour l'hydrogène et pour les 20 gaz parasites ;
  - 25 - on détermine la pression (P<sub>2</sub>(opt) ; P'<sub>2</sub>(opt)) d'un mélange gazeux de référence, possédant une teneur donnée en hydrogène, dans la zone médiane (18<sub>2</sub> ; 118<sub>2</sub>) de la ligne principale ; et
  - 30 - on régule l'écoulement d'un mélange gazeux instantané, dans la ligne de dérivation (20 ; 120), en fonction des valeurs relatives, d'une part, de la pression (P<sub>2</sub>(inst) ; P'<sub>2</sub>(inst)) de ce mélange instantané et, d'autre part, de la pression du mélange de référence, dans ladite zone médiane (18<sub>2</sub> ; 118<sub>2</sub>).
2. Procédé selon la revendication 1, caractérisé en ce qu'on maintient sensiblement constante la différence entre la pression amont (P<sub>AM</sub> ; P'<sub>AM</sub>) et la pression aval (P<sub>AV</sub> ;

$P'_{Av}$ ), régnant respectivement en amont et en aval de cette ligne principale et de cette ligne de dérivation.

3. Procédé selon la revendication 1 ou 2, caractérisé en ce que les premiers (22) et seconds (24) moyens de 5 création de pertes de charge sont tels que la pression d'équilibre de l'hydrogène est supérieure à la pression d'équilibre des gaz parasites, dans la zone médiane (18<sub>2</sub>).

4. Procédé selon la revendication 3, caractérisé en ce qu'on autorise (par 26) l'écoulement du mélange gazeux 10 instantané dans la dérivation (20), uniquement lorsque la pression ( $P(inst)$ ) de ce mélange gazeux instantané est inférieure à la pression ( $P(opt)$ ) du mélange gazeux de référence, dans la zone médiane (18<sub>2</sub>).

5. Procédé selon la revendication 4, caractérisé en ce 15 qu'on munit la ligne de dérivation (20) d'un organe de régulation de la pression amont (26).

6. Procédé selon la revendication 5, caractérisé en ce qu'on affecte audit organe de régulation de la pression amont (26), une pression de référence représentative de la 20 pression ( $P(opt)$ ,  $P(inst)$ ) du mélange gazeux dans la zone médiane (18<sub>2</sub>).

7. Procédé selon la revendication 1 ou 2, caractérisé en ce que les premiers (124) et seconds (122) moyens de 25 création de pertes de charge sont tels que la pression d'équilibre des gaz parasites est supérieure à la pression d'équilibre de l'hydrogène, dans la zone médiane (118<sub>2</sub>).

8. Procédé selon la revendication 7, caractérisé en ce qu'on autorise (par 126) l'écoulement du mélange gazeux instantané dans la dérivation (120), uniquement lorsque la 30 pression ( $P'(inst)$ ) de ce mélange gazeux instantané est supérieure à la pression ( $P'(opt)$ ) du mélange gazeux de référence, dans la zone médiane (118<sub>2</sub>).

9. Procédé selon la revendication 8, caractérisé en ce qu'on munit la ligne de dérivation (120) d'un organe de régulation de la pression aval (126).

10. Procédé selon la revendication 9, caractérisé en ce qu'on affecte audit organe de régulation de la pression aval (126), une pression de référence représentative de la pression ( $P'_{(opt)}$ ,  $P'_{(inst)}$ ) du mélange gazeux, dans la zone médiane (118<sub>2</sub>).

11. Procédé selon l'une quelconque des revendications précédentes, caractérisé en ce que les premiers moyens de création de perte de charge (22 ; 124) sont aptes à créer une perte de charge singulière ou laminaire, alors que les seconds moyens de création de perte de charge (24 ; 122) sont aptes à créer une perte de charge laminaire ou singulière.

12. Procédé selon la revendication 11, caractérisé en ce que les moyens aptes à créer une perte de charge singulière comprennent un trou calibré (22 ; 122).

13. Procédé selon la revendication 11 ou 12, caractérisé en ce que les moyens aptes à créer une perte de charge laminaire comprennent un organe poreux (24 ; 124).

14. Procédé selon l'une quelconque des revendications précédentes, caractérisé en ce qu'on chauffe la ligne principale (18 ; 118), au moins au voisinage des premiers et seconds moyens de création de pertes de charge.

15. Dispositif de contrôle de la teneur en hydrogène d'un mélange gazeux, pour la mise en œuvre du procédé selon l'une quelconque des revendications précédentes, ce mélange gazeux circulant à la sortie d'une anode (2) d'un bloc pile à combustible et comprenant de l'hydrogène ainsi que des gaz parasites, en particulier de l'azote, ce dispositif pouvant être mis en communication avec un circuit de purge (14), prévu en aval du bloc pile, caractérisé en ce que ce dispositif comprend :

- une ligne principale (18 ; 118), ainsi qu'une ligne de dérivation (20 ; 120), placées en parallèle ;

5 - des premiers (22 ; 124) et seconds (24 ; 122) moyens de création de pertes de charge, prévus dans la ligne principale, qui sont tels que les pressions d'équilibre, dans une zone médiane (18<sub>2</sub> ; 118<sub>2</sub>) de la ligne principale, située entre ces premiers et seconds moyens de création de pertes de charge, sont différentes pour l'hydrogène et pour les gaz parasites ;

10 - un organe de régulation de la pression (26 ; 126), disposé sur la ligne de dérivation ; et

15 - des moyens (32 ; 132) permettant de mettre cet organe de régulation (26 ; 126) à une pression de référence, représentative de la pression du mélange gazeux dans la zone médiane (18<sub>2</sub> ; 118<sub>2</sub>) de la ligne principale.

16. Dispositif selon la revendication 15, caractérisé en ce qu'il comprend en outre des moyens de contrôle de la pression, aptes à maintenir sensiblement constante la différence entre la pression amont (P<sub>AM</sub> ; P'<sub>AM</sub>) et la pression aval (P<sub>AV</sub>, P'<sub>AV</sub>), régnant respectivement en amont et en aval de la ligne principale et de la ligne de dérivation.

17. Dispositif selon la revendication 15 ou 16, caractérisé en ce que les premiers (22) et seconds (24) moyens de création de pertes de charge sont tels que la pression d'équilibre de l'hydrogène est supérieure à la pression d'équilibre des gaz parasites, dans la zone médiane (18<sub>2</sub>) .

18. Dispositif selon la revendication 17, caractérisé en ce que l'organe de régulation de pression est un organe de régulation de la pression amont (26) .

19. Dispositif selon la revendication 15 ou 16, caractérisé en ce que les premiers (124) et seconds (122) moyens de création de pertes de charge sont tels que la

pression d'équilibre des gaz parasites est supérieure à la pression d'équilibre de l'hydrogène, dans la zone médiane ( $118_2$ ).

20. Dispositif selon la revendication 19, caractérisé en ce que l'organe de régulation de la pression est un organe de régulation de la pression aval (126).

21. Dispositif selon l'une des revendications 15 à 20, caractérisé en ce que les moyens de mise à une pression de référence comprennent une ligne (32 ; 132), mettant en communication cet organe avec la zone médiane ( $18_2$  ;  $118_2$ ).

22. Dispositif selon l'une des revendications 15 à 21, caractérisé en ce que les premiers moyens de création de perte de charge (22 ; 124) sont aptes à créer une perte de charge singulière ou laminaire, alors que les seconds moyens de création de perte de charge (24 ; 122) sont aptes à créer une perte de charge laminaire ou singulière.

23. Dispositif selon la revendication 22, caractérisé en ce que les moyens aptes à créer une perte de charge singulière comprennent un trou calibré (22 ; 122).

24. Dispositif selon la revendication 22 ou 23, caractérisé en ce que les moyens aptes à créer une perte de charge laminaire comprennent un organe poreux (24 ; 124).

25. Dispositif selon l'une des revendications 15 à 24, caractérisé en ce qu'il comprend en outre des moyens de chauffage de la ligne principale (18 ; 118), prévus au moins au voisinage des premiers et seconds moyens de création de perte de charge.

26. Ensemble de production d'énergie à base de pile à combustible, comprenant un bloc pile à combustible qui comporte un compartiment cathodique et un compartiment anodique (2), au moins un circuit d'alimentation (6) en hydrogène, au moins un circuit de sortie (10), et au moins un circuit de purge (14), permettant d'évacuer un mélange d'hydrogène et de gaz parasites, en particulier d'azote,

2831994

23

cet ensemble étant caractérisé en ce que le ou chaque circuit de purge (14) est mis en communication avec un dispositif de contrôle (16) conforme à l'une quelconque des revendications 15 à 25.

5

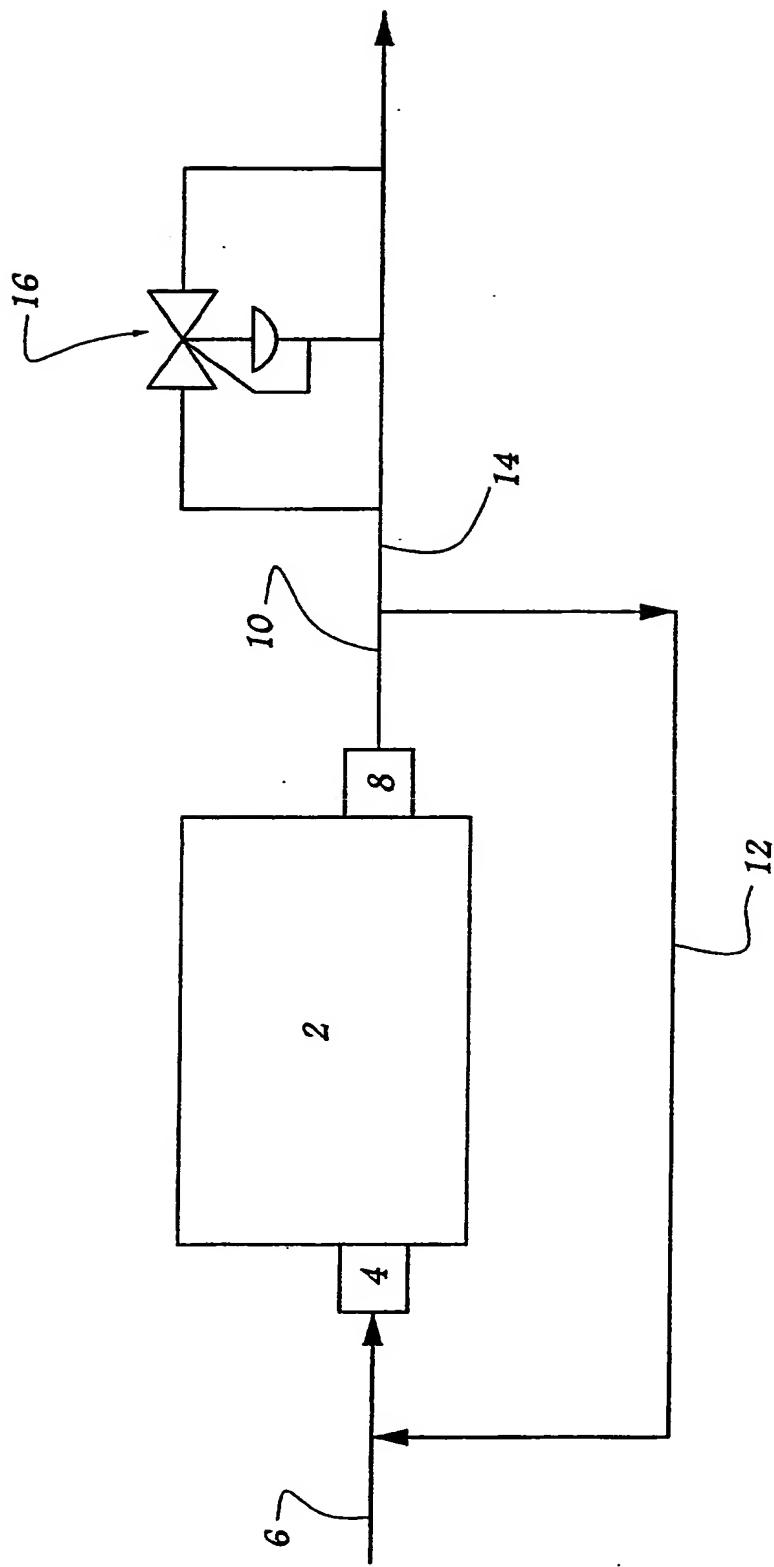


Fig. 1

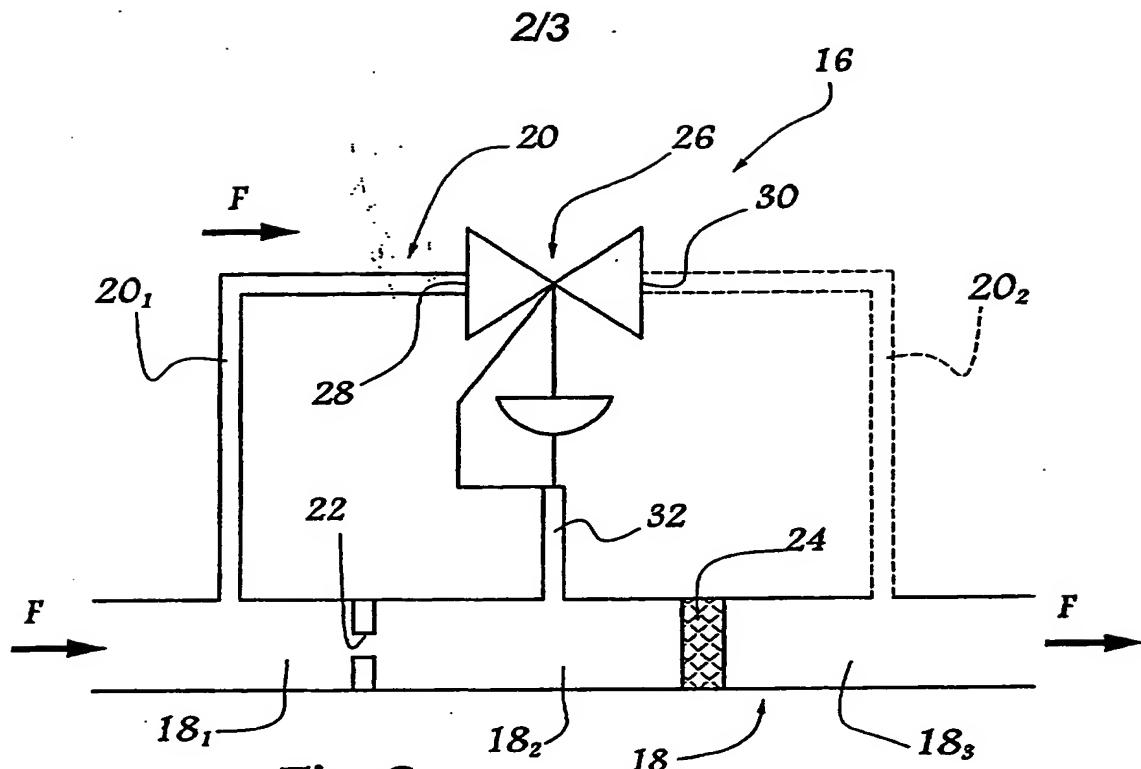


Fig. 2

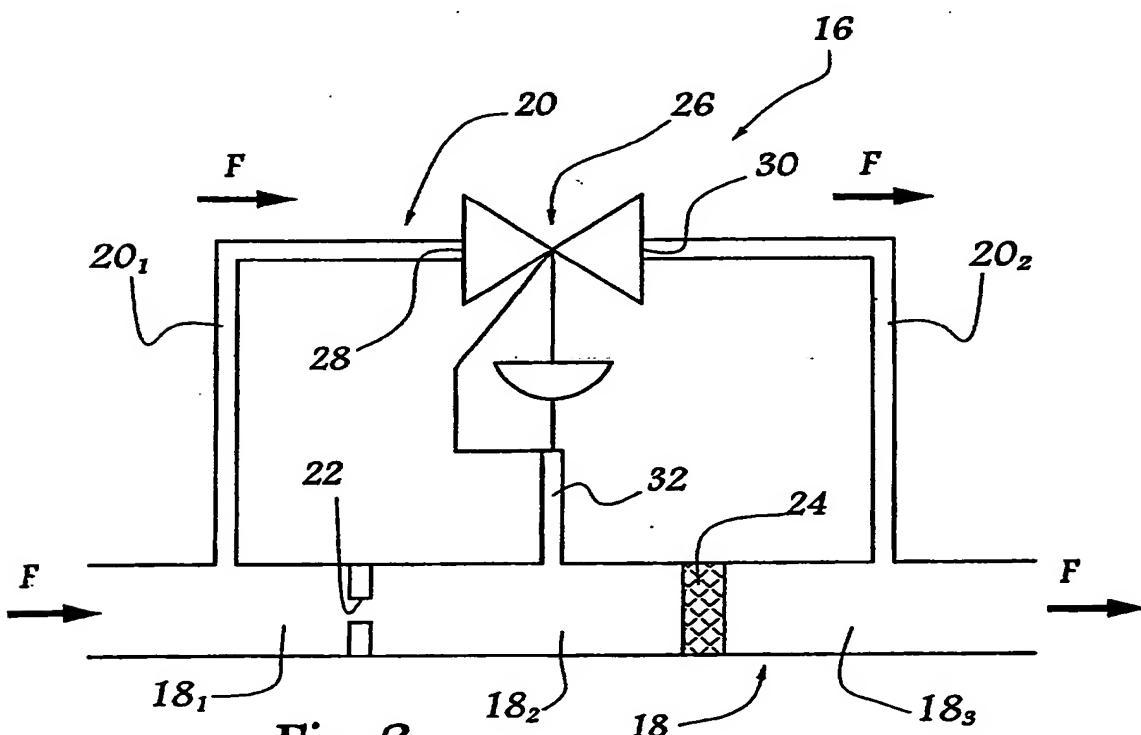
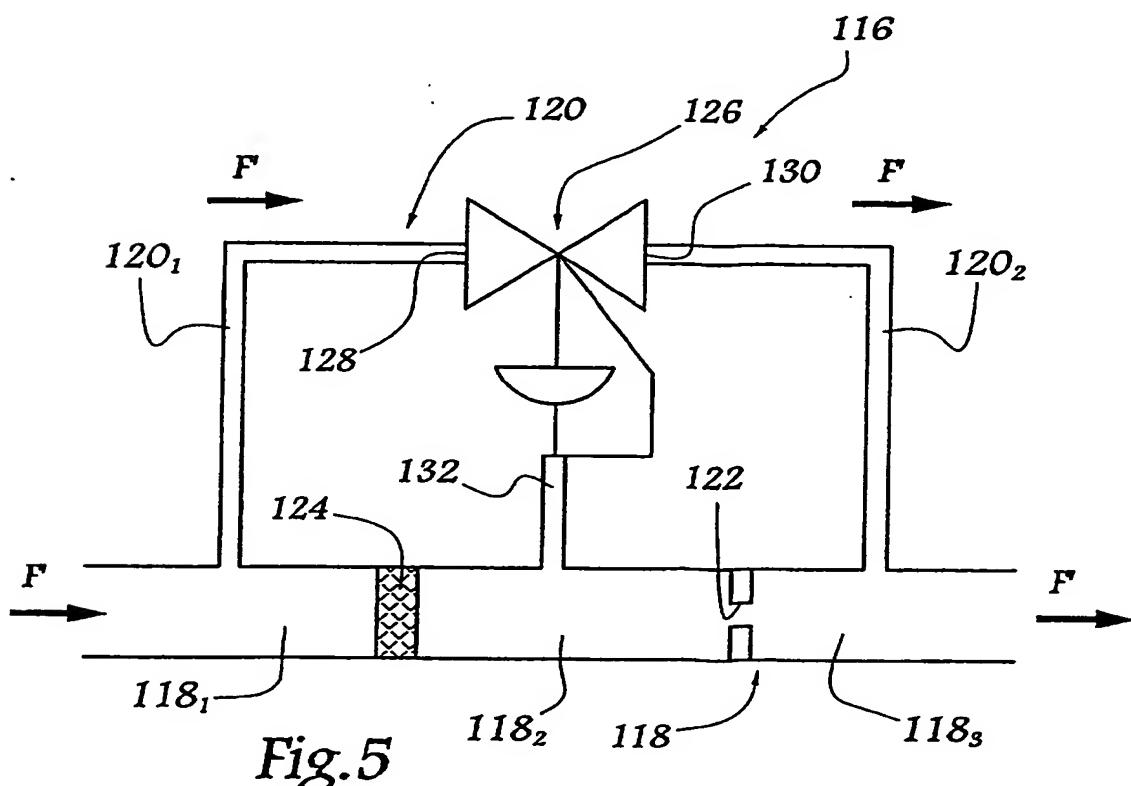
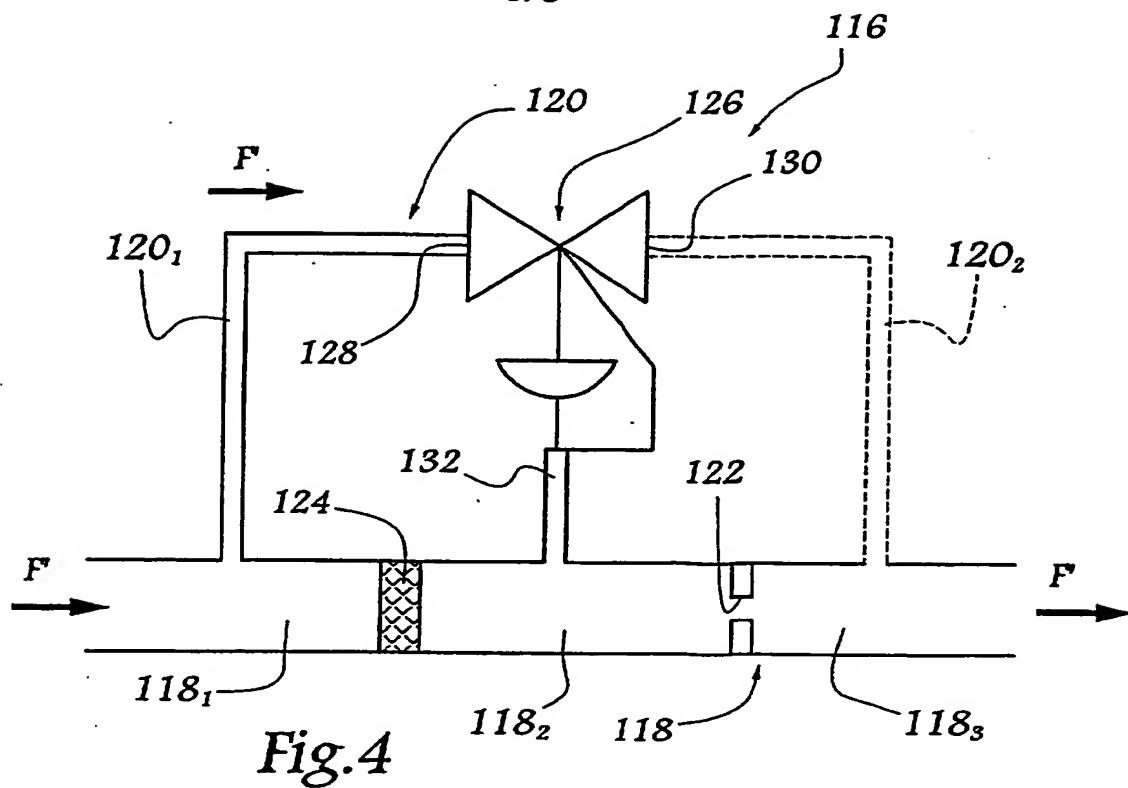


Fig. 3

3/3



**RAPPORT DE RECHERCHE**  
**PRÉLIMINAIRE**

 établi sur la base des dernières revendications  
 déposées avant le commencement de la recherche

<b>DOCUMENTS CONSIDÉRÉS COMME PERTINENTS</b>		Revendication(s) concernée(s)	Classement attribué à l'invention par l'INPI
Catégorie	Citation du document avec indication, en cas de besoin, des parties pertinentes		
A	EP 1 018 774 A (AIR LIQUIDE) 12 juillet 2000 (2000-07-12)		H01M8/04 G05D7/00
DOMAINES TECHNIQUES RECHERCHÉS (Int.Cl.7)			
H01M			
1			
Date d'achèvement de la recherche		Examinateur	
8 août 2002		D'hondt, J	
<b>CATÉGORIE DES DOCUMENTS CITÉS</b> X : particulièrement pertinent à lui seul Y : particulièrement pertinent en combinaison avec un autre document de la même catégorie A : amorce-plan technologique O : divulgation non écrite P : document intercalaire  T : théorie ou principe à la base de l'invention E : document de brevet bénéficiant d'une date antérieure à la date de dépôt et qui n'a été publié qu'à cette date de dépôt ou qu'à une date postérieure. D : cité dans la demande L : cité pour d'autres raisons & : membre de la même famille, document correspondant			

2831994

**ANNEXE AU RAPPORT DE RECHERCHE PRÉLIMINAIRE  
RELATIF A LA DEMANDE DE BREVET FRANÇAIS NO. FR 0114322 FA 610421**

La présente annexe indique les membres de la famille de brevets relatifs aux documents brevets cités dans le rapport de recherche préliminaire visé ci-dessus.

Les dits membres sont contenus au fichier informatique de l'Office européen des brevets à la date d**08-08-2002**

Les renseignements fournis sont donnés à titre indicatif et n'engagent pas la responsabilité de l'Office européen des brevets, ni de l'Administration française

Document brevet cité au rapport de recherche	Date de publication	Membre(s) de la famille de brevet(s)	Date de publication
EP 1018774 A 12-07-2000	FR 2788170 A1 07-07-2000 EP 1018774 A1 12-07-2000 JP 2000215905 A 04-08-2000		

EPO FORM P0465

Pour tout renseignement concernant cette annexe : voir Journal Officiel de l'Office européen des brevets, No.12/82